

ORSAY
Série A
N° d'ordre :
84

DETERMINATION DE COEFFICIENTS DE SURTENSION TRES ELEVES.
APPLICATION A LA MESURE EN U.H.F. DE LA RESISTANCE
SUPERFICIELLE DE MATERIAUX SUPRACONDUCTEURS.

-:-:-

Article principal

Recouvrant en partie la thèse de Docteur-Ingénieur enregistrée
au C.N.R.S. sous le numéro AO 3623.

de

Michel SALAÜN

Soutenue à la Faculté des Sciences d'Orsay, devant le Jury :

MM. P. GRIVET , Président

A. SEPTIER :

F. BERTEIN, Examineurs.

1969

-:-:-

ÉLECTROMAGNÉTISME. — *Mesure à 9 GHz de coefficients de surtension élevés par la « méthode du déphasage » dans le cas d'un oscillateur bouclé sur une cavité supraconductrice.* Note (*) de M. MICHEL SALAÜN, présentée par M. Louis de Broglie.

La méthode du déphasage, utilisée pour la mesure du coefficient de surtension d'une cavité peut être mise en œuvre dans un oscillateur bouclé, à condition de filtrer soigneusement les signaux B. F. détectés à l'entrée et à la sortie de la cavité.

James ⁽¹⁾ a montré que la détermination de coefficients de surtension Q pouvait s'effectuer avec un générateur indépendant de la cavité, modulé en amplitude par une tension de basse fréquence f sinusoïdale. Le dépha-

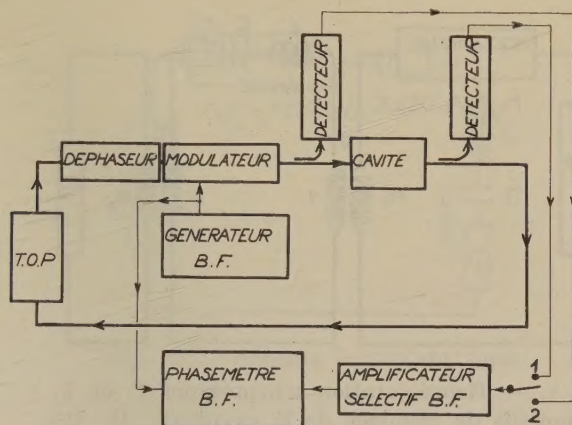


Fig. 1. — Dispositif expérimental.

sage φ qui existe alors entre les signaux enveloppes φ_e et φ_s détectés à l'entrée et à la sortie du résonateur est lié à Q par la relation

$$(1) \quad \operatorname{tg} \varphi = 2Q \frac{f}{F},$$

F désigne la fréquence de l'onde porteuse, qui doit être rigoureusement égale à la fréquence de résonance de la cavité ⁽¹⁾; de plus, le signal U. H. F. doit être exempt de toute modulation de phase parasite ⁽²⁾.

Pour mesurer Q on peut penser moduler en basse fréquence l'amplitude de l'onde circulant dans la boucle d'un auto-oscillateur [⁽³⁾, ⁽⁴⁾] représenté schématiquement sur la figure 1 et constitué d'un amplificateur hyperfréquence, de la cavité étudiée utilisée en transmission, d'un déphaseur U. H. F. et d'un modulateur. Un tel système oscille à la fréquence de résonance de la cavité. Les signaux de modulation basse fréquence détectés à l'entrée et à la sortie de la cavité sont alors envoyés sur les entrées d'un phasemètre; on peut alors calculer le coefficient de surtension par application de la formule (1).

En utilisant le même auto-oscillateur, nous avons pu comparer les valeurs d'un même coefficient de surtension, obtenues soit par ce procédé dit « du déphasage », soit par la méthode dite « du décrétement logarithmique » ⁽⁴⁾. Nous avons alors constaté que l'emploi de la méthode du déphasage et de la formule (1) conduit à une erreur systématique importante qui peut dépasser 50 % de la valeur exacte de Q (supposée connue avec la méthode du décrétement).

Afin d'expliquer les écarts observés entre les valeurs des coefficients de surtension mesurés par les deux méthodes, nous avons effectué le calcul de la modulation de l'onde H. F. dans un auto-oscillateur bouclé dans le circuit duquel un élément résistif est modulé par un signal B. F. sinusoïdal.

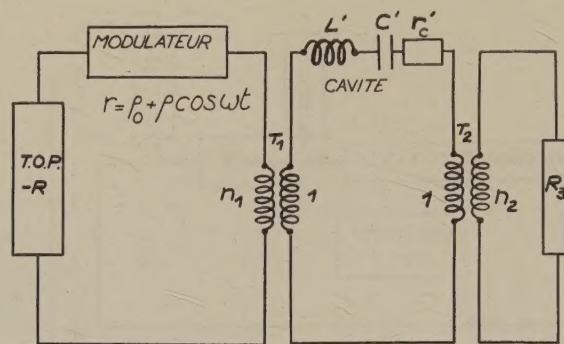


Fig. 2. — Représentation schématique T_1 et T_2 : dispositifs de couplage de la cavité (L' , R_c , C').

PRINCIPE DU CALCUL. — Le schéma du dispositif hyperfréquence représenté sur la figure 1 est équivalent à ceux des figures 2 et 3. Dans le montage réel le modulateur est attaqué par le signal B. F. de pulsation $\omega = 2\pi f$; il est supposé uniquement dissipatif et représentable par une résistance de valeur instantanée $r = \rho_0 + \rho \cos \omega t$; ($-R$) est la résistance négative du tube amplificateur à onde progressive (T. P. O.); L , C et r_c sont les éléments représentatifs du circuit équivalent de la cavité ramenés dans la maille du T. P. O.; enfin r_s traduit l'existence des pertes U. H. F. du circuit, à l'exclusion de celles du modulateur et du résonateur.

Si l'on applique la loi d'Ohm au circuit de la figure 3, en désignant la charge aux bornes du condensateur par q et en posant

$$\alpha = -\frac{\rho_0 + r_s - R + r_c}{2L\Omega_0}, \quad \alpha' = \frac{\rho}{2L\Omega_0}, \quad \Omega_0 = (LC)^{-\frac{1}{2}},$$

On obtient

$$\frac{d^2 q}{dt^2} + 2\Omega_0(\alpha' \cos \omega t - \alpha) \frac{dq}{dt} + q\Omega_0^2 = 0.$$

En régime permanent la résistance négative du T. P. O. compense exactement les pertes du circuit ($\alpha = 0$); on a alors après le changement de variable : $q = y e^{-\alpha' (\Omega_0/\omega) \sin \omega t / \Omega_0'}$, une équation de Hill :

$$(2) \quad \frac{d^2 y}{dt^2} + \Omega_0^2 \left(1 + \alpha' \frac{\omega}{\Omega_0} \sin \omega t - \alpha'^2 \cos^2 \omega t \right) y = 0.$$

L'équation (2) se résout par la méthode de Horn-Jeffreys et conduit à une solution périodique. En tenant compte des ordres de grandeur des divers paramètres utilisés ici ($\Omega_0 \gg \omega$) on obtient les expressions du courant i dans le circuit, puis la tension v aux bornes du circuit résonnant; on peut montrer que ces signaux i et v sont respectivement proportionnels

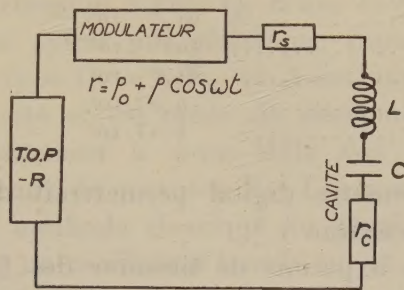


Fig. 3. — Schéma équivalent final.

aux parties variables des tensions de modulation v_e et v_s détectés à l'entrée et à la sortie de la cavité :

$$(3) \quad v_e = \left(1 - \frac{M}{E} \cos \omega t \right) e^{-M \sin \omega t},$$

$$(4) \quad v_s = e^{-M \sin \omega t},$$

avec

$$E = \frac{\Omega_0}{2 Q \omega} \quad \text{et} \quad M = \alpha' \frac{\Omega_0}{\omega}.$$

Si v_e et v_s sont envoyés sur un phasemètre B. F., celui-ci mesure le décalage relatif D entre les passages par zéro de ces signaux non sinusoïdaux; et D n'est plus égal à l'angle de phase φ défini par (1).

Le développement en série de Fourier de v_e et v_s montre que les harmoniques de rang n de chaque signal sont déphasés l'un par rapport à l'autre d'un angle $\varphi_{n\omega}$ tel que

$$(5) \quad \text{tg } \varphi_{n\omega} = 2 Q \frac{nf}{F_0}.$$

En particulier, on peut utiliser le fondamental seul; le montage de la figure 1 permet de mesurer le déphasage φ_ω correspondant, en compa-

rant successivement la phase de chacun des signaux ν_e et ν_s préalablement filtrés à travers un amplificateur sélectif, à celle du générateur sinusoïdal de modulation. La forme des signaux (3) et (4) correspond bien à celle des signaux relevés expérimentalement.

RÉSULTATS ET DOMAINES D'EMPLOI DE LA MÉTHODE. — Le tableau suivant permet de comparer les résultats Q_d obtenus avec la méthode du décrétement logarithmique, à ceux Q_φ résultant de l'emploi de la méthode de modulation sinusoïdale d'amplitude utilisant les signaux filtrés. L'écart relatif entre les deux méthodes est voisin de 5 %; l'erreur relative commise avec notre méthode est également estimée à 5 %.

Q_d	Q_φ	$\frac{Q_d - Q_\varphi}{Q_d} \times 100$
97.10 ⁶	91,7 .10 ⁶	5
39.10 ⁶	40 .10 ⁶	2,56
12,75.10 ⁶	11,8 .10 ⁶	7,45
9,35.10 ⁶	9,07.10 ⁶	3
1,57.10 ⁶	1,53.10 ⁶	2,87

L'emploi d'un phasemètre digital permettrait de réduire les erreurs relatives de mesure à environ 1 %.

Cette méthode nous a permis de mesurer des facteurs de surtension compris entre 10⁴ et 10⁸ [la méthode du décrétement (4) est d'un emploi très difficile pour $Q < 10^6$], notre amplificateur sélectif ne fonctionnant bien qu'entre 20 Hz et 50 kHz. Elle nous a permis de déterminer successivement le facteur de qualité d'une cavité supraconductrice, puis de la même cavité ramenée à l'état normal ($Q < 10^3$) par application d'un champ magnétique intense produit par une bobine supraconductrice (5).

(*) Séance du 16 juillet 1969.

(1) F. H. JAMES, *Proc. Inst. Electr. Engrs*, 106, B, 1959, p. 489.

(2) F. H. JAMES, *Proc. Inst. Electr. Engrs*, 108, B, 1961, p. 306.

(3) M. S. KHAIKIN, *Inst. and Tech.*, 3, 1961, p. 518.

(4) NGUYEN TUONG VIET, *Comptes rendus*, 258, 1964, p. 4218.

(5) Cette Note recouvre un travail de thèse de Docteur-Ingénieur qui a été soutenue le 24 mars 1969 à la Faculté des Sciences d'Orsay, et enregistrée à la Faculté des Sciences d'Orsay sous le n° A 84.

(Institut d'Électronique fondamentale,
Laboratoire associé au C. N. R. S.,
Faculté des Sciences,
Bâtiment 220,
91-Orsay, Essonne.)

ÉLECTROMAGNÉTISME. — *Résistance de surface de couches minces supraconductrices de plomb déposées par électrolyse.* Note (*) de MM. **ALBERT SEPTIER** et **MICHEL SALAÜN**, présentée par M. Louis de Broglie.

La résistance de surface des couches minces de plomb obtenues par électrolyse varie de façon complexe avec la densité de courant utilisée pour le dépôt. A 4,2°K, les valeurs expérimentales obtenues à 9 000 et 3 000 MHz sont conformes aux prévisions théoriques, mais une résistance résiduelle importante apparaît à plus basse température.

Le coefficient de surtension à vide Q_0 d'une cavité résonnante réalisée en matériau homogène ayant une résistance superficielle R_s , est donné par une expression du type $Q_0 = A/R_s$, où A est une constante dépendant de la forme de la cavité et du mode de résonance. L'utilisation d'une cavité cylindrique résonnant à 9 000 MHz sur le mode TE_{012} , avec $A = 930 \Omega$, nous a permis de mesurer R_s . Les mesures du coefficient Q_0 sont effectuées par la méthode classique du décrément, ou par celle du déphasage, en utilisant un oscillateur bouclé sur la cavité [(1), (2)].

La cavité est formée de deux parties fixes : une partie cylindrique et un couvercle plan portant les sondes de couplage H. F., et d'un fond plan escamotable, constitué par un disque de cuivre épais recouvert du dépôt à étudier. Un système mécanique simple (*fig. 1*) permet de mettre en place successivement six fonds portant des revêtements différents. Le premier disque, qui sert de référence, est toujours revêtu du même dépôt que les parties fixes de la cavité. On mesure alors la résistance R_s de ce dépôt, puis les coefficients de surtension Q_i correspondant aux cinq autres échantillons. Si R_{s_i} désigne la résistance superficielle du $i^{\text{ème}}$ échantillon, on a alors, pour notre cavité :

$$\frac{Q_i}{Q_0} = \frac{5}{4 + \frac{R_{s_i}}{R_{s_0}}}$$

(Q_0 correspond à l'échantillon de référence de résistance R_{s_0}), et on peut en déduire R_{s_i} . La cavité et le dispositif mécanique sont placés dans une boîte étanche plongée dans l'hélium liquide, où la pression (avant refroidissement) est de l'ordre de 10^{-3} Torr. La température peut être abaissée à 2°K par diminution de la pression régnant au-dessus du bain d'hélium.

Des bobines disposées autour du cryostat permettent de réduire le champ magnétique terrestre à 10^{-2} Oe dans tout le volume de la boîte, ce qui réduit au maximum les flux magnétiques piégés dans le plomb au

cours du refroidissement. D'autre part, un solénoïde supra-conducteur permet de ramener les dépôts à l'état normal par application d'un champ magnétique de 2 000 Oe.

La qualité d'une couche supraconductrice de résistance superficielle R_s peut être caractérisée par le rapport $K = R_l/R_s$ où R_l désigne la résistance superficielle du métal à l'état normal. Pour $T \leq 4,2^\circ\text{K}$, R_l correspond

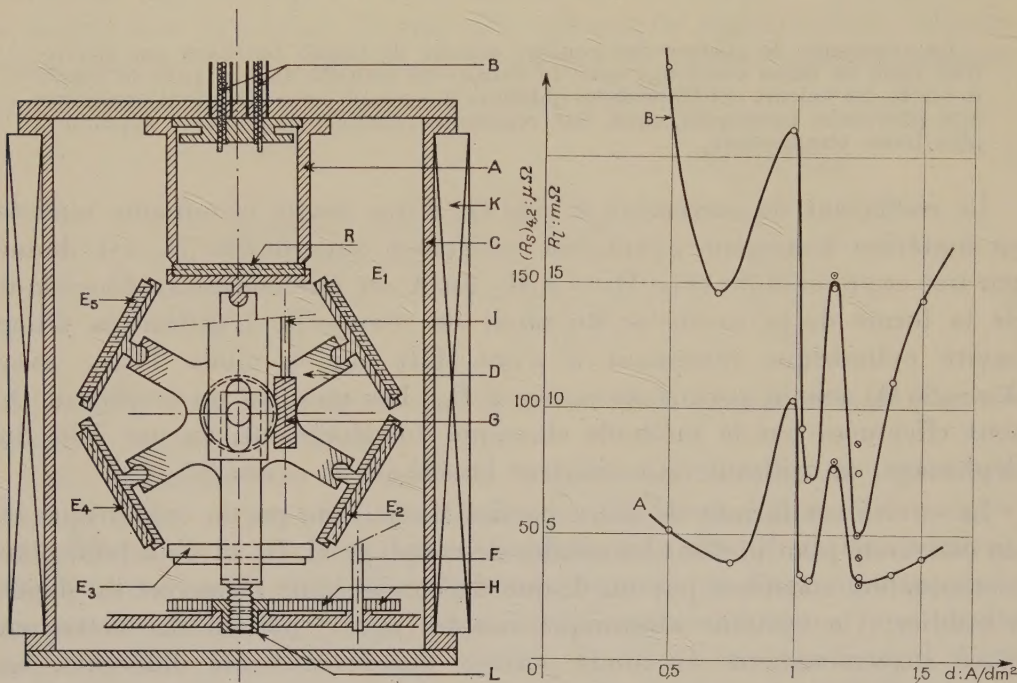


Fig. 1.

Fig. 2.

Fig. 1. — Schéma du dispositif mécanique.

A : cavité de référence; B : câbles coaxiaux; C : enceinte étanche; D : barillet; E_i : échantillons; F, H : montée et descente du barillet; j, G : rotation du barillet; K : bobine supraconductrice; L : vérin; R : échantillon de référence.

Fig. 2. — Variations de R_s ($4,2^\circ\text{K}$) (courbe A) et de R_l ($4,2^\circ\text{K}$) (courbe B) en fonction de la densité de courant de dépôt.

à la résistance limite donnée par les lois de l'effet de peau anormal, et ne varie pas avec la température.

Les valeurs théoriques de R_s à 9 000 MHz, pour le plomb à l'état supraconducteur, peuvent être déduites des valeurs calculées à d'autres fréquences, par différents auteurs [(3), (4)] en tenant compte des valeurs connues de la longueur de cohérence et du libre parcours moyen des électrons. On obtient ainsi $R_{s\text{théorique}} = 3,1 \cdot 10^{-5} \Omega$ à $4,2^\circ\text{K}$ et $6,4 \cdot 10^{-7} \Omega$ à 2°K , alors que $R_l = 5,7 \cdot 10^{-3} \Omega$, ce qui correspond à

$$K(4,2^\circ\text{K}) \simeq 180 \quad \text{et} \quad K(2^\circ\text{K}) \simeq 9 \cdot 10^3.$$

Les dépôts ont été préparés au Centre de Recherche CSF-Thomson de Corbeville, à partir de bains de fluoborate de plomb. Un additif organique, dont la présence permet d'obtenir des états de surface de bonne qualité, a été incorporé au bain. Le plomb est déposé sur des supports de cuivre OFHC, polis mécaniquement, nettoyés chimiquement, puis recouverts d'une couche très mince de cuivre électrolytique microcristallin non poreux. L'épaisseur des couches est supérieure à $10\ \mu$ dans la plupart des cas.

Dans chaque expérience, les six échantillons correspondaient, pour un bain d'électrolyse de caractéristiques données, à différentes valeurs de la densité de courant de dépôt d , choisies entre $0,5$ et $2,5\ \text{A/dm}^2$, domaine dans lequel l'aspect et la structure de la couche polycristalline obtenue varient peu.

Les valeurs de R_s obtenues avec des couches préparées sans additif organique (bain pur) sont toujours très élevées ($R_s \simeq 10^{-4}\ \Omega$ à $4,2^\circ\text{K}$); dans ces conditions, la surface présente des reliefs importants, et on observe des discontinuités entre grains. Avec additif organique, les grains observables au microscope sont plus réguliers, et leurs dimensions varient de 1 à $2\ \mu$, pour des couches d'épaisseur supérieure à $5\ \mu$.

La résistance de surface varie en fonction de la densité de courant de dépôt d , et présente plusieurs minimums très aigus dans le domaine exploré. La courbe A de la figure 2 en est un exemple typique, correspondant à $T = 4,2^\circ\text{K}$. Les valeurs minimales de R_s obtenues pour $d = 1,05$ et $d = 1,25\ \text{A/dm}^2$ sont pratiquement égales à la valeur théorique. Par contre, à $T = 2^\circ\text{K}$, la résistance R_s correspondant à ces valeurs de d est encore 5 fois plus forte que la valeur théorique [$R_s(T = 2^\circ\text{K}) \simeq 3 \cdot 10^{-6}\ \Omega$], ce qui met en évidence l'existence d'une résistance résiduelle importante. Les variations de R_s ne peuvent être reliées à des variations de structures des couches, car des examens aux rayons X ont montré que la taille des cristaux et leur orientation variaient peu avec d . Il semble que les valeurs maximales de R_s soient dues plutôt à l'introduction d'impuretés carbonées provenant de la dissociation sélective, pour certaines valeurs de d , de certaines molécules d'acides aminés composant l'additif organique. Une analyse spectroscopique a décelé effectivement des quantités non négligeables de carbone, pour les valeurs de d correspondant aux maximums de R_s .

Les valeurs de R_l ont également été mesurées à $4,2^\circ\text{K}$, les couches de plomb ayant été ramenées à l'état normal. Les variations de R_l en fonction de d ont la même allure que celles de R_s (courbe B de la figure 2). Or, R_l varie comme $(l/\sigma)^{1/3}$, σ désignant la conductivité en courant continu.

L'examen des courbes de variation de R_s montre que la réalisation par électrolyse de cavités de forme complexe ayant de très bons coeffi-

cients de surtension nécessite l'utilisation d'anodes spéciales, permettant d'obtenir des densités de courant d identiques en tous points. D'autre part, l'emploi d'additifs de structure simple, comme l'hydroquinone, permet d'adoucir les variations de R_s en fonction de d .

Cette Note recouvre en partie un travail de thèse de Docteur-Ingénieur de M. M. Salaün qui a été soutenue le 24 mars 1969 à la Faculté des Sciences d'Orsay et enregistrée à la Faculté des Sciences sous le n° A 84.

(*) Séance du 29 septembre 1969.

(¹) NGUYEN TUONG VIET, *Comptes rendus*, 258, 1964, p. 4218.

(²) M. SALAÜN, *Comptes rendus*, 269, série B, 1969, p. 347.

(³) J. P. TURNEAURE, Technical Report H. E. P. L. n° 507, mai 1967, Stanford.

(⁴) H. HAHN et H. J. HALAMA, Rapport interne A. A. D. D. 129, Brookhaven National Laboratory, janvier 1967.

(Institut d'Électronique fondamentale,
Laboratoire
associé au C. N. R. S.,
Faculté des Sciences,
Bâtiment 220,
91-Orsay, Essonne.)

